

## Estudio de la activación neutrónica del acero inoxidable en un reactor nuclear.

Ignacio Lázaro Roche\*, José Ródenas Diago, J.G.Marques  
Finalista Premio Proyectos.  
\*iglaroc@gmail.com

**Resumen** – Durante la operación de un reactor nuclear, diferentes componentes pueden activarse por reacciones neutrónicas. La actividad así generada produce una dosis que es un riesgo potencial para los trabajadores del entorno. Se ha simulado mediante los códigos MCNP y CINDER'90 dicha activación en una pieza de acero y comparado los valores obtenidos con mediciones experimentales. Se verifica la equivalencia de ambos métodos para los cálculos de activación neutrónica y evolución de la tasa de dosis con el tiempo de enfriamiento.

### 1. INTRODUCCIÓN

El funcionamiento normal de un reactor nuclear produce la activación de los componentes del núcleo mediante diferentes reacciones nucleares. Dichos elementos internos del reactor, al ser extraídos y almacenados, producen un impacto radiológico en el entorno que debe ser evaluado para la correcta protección de personas y materiales.

Las reacciones de activación pueden ser simuladas con el código MCNP5 [1], basado en el método Monte Carlo (MC) y el software CINDER'90. El número de reacciones calculadas puede ser convertido en actividad. En trabajos anteriores [2-5], diversos modelos MC han sido desarrollados para estimar la actividad generada, así como la dosis alrededor de la piscina de almacenamiento. Dichos modelos han sido validados por comparación de los resultados de la simulación con medidas experimentales en una central nuclear.

En el presente trabajo los modelos MC y CINDER'90 se comparan considerando la activación neutrónica producida en una muestra de acero inoxidable irradiada en el *Reactor Português de Investigação* (RPI), del *Instituto Tecnológico e Nuclear* (ITN). Posteriormente se valida el modelo midiendo la tasa de dosis en la superficie de la piscina del reactor, ya que dicha situación es representativa de lo que ocurre con las barras de control en la piscina de almacenamiento de una central nuclear.

### 2. METODOLOGÍA

#### 2.1. Modelo de activación

La actividad generada en reacciones neutrónicas depende de la sección eficaz, el espectro neutrónico, la distribución del flujo neutrónico, la concentración de precursores de cada radionucleido y el tiempo de irradiación. Después de la irradiación, la actividad decrece con el tiempo de enfriamiento y la constante de desintegración.

La tasa de interacción  $Q$  (reacciones /cm<sup>3</sup>·s) se define como:

$$Q = C \int \phi(E) \sigma(E) dE \quad (1)$$

Siendo:  $C$  el factor de normalización (at/barn·cm),  $\Phi(E)$  el flujo de neutrones (n/cm<sup>2</sup>·s) y  $\sigma(E)$  la sección eficaz microscópica de la reacción (barn).

El valor de la constante C depende de la abundancia isotópica de cada material, por lo que es característica y constante para cada isótopo de un cierto material.

$$C = \frac{\rho_{\text{material}} \cdot 10^{-24} \left( \frac{\text{barn}}{\text{cm}^2} \right) \cdot N_A \cdot \omega_{\text{elemento}} \cdot \text{Abun}_{\text{isotopo}}}{M_{\text{isotopo}}} \quad (2)$$

Donde:  $\rho_{\text{material}}$  es la densidad del material en  $\text{g/cm}^3$ ,  $N_A$  el número de Avogadro,  $\omega_{\text{elemento}}$  la fracción másica del elemento en tanto por uno;  $\text{Abun}_{\text{isotopo}}$  es la abundancia del isótopo en tanto por uno y  $M_{\text{isotopo}}$  la masa molecular del isótopo en g/mol.

La composición de la muestra, obtenida por el método de Partículas Inducidas por Rayos X (PIXE) [6], aparece listada en la Tabla 1.

**Tabla 1: Composición de la muestra de acero inoxidable.**

Elemento	%	Elemento	%
Fe	70.55	Si	0.76
Cr	18.87	Mo	0.20
Ni	7.47	Cu	0.20
Mn	1.90	V	0.05

Por otra parte, para cada isótopo  $j$  generado, se puede hacer un balance de materia:

$$\frac{dN_j}{dt} = Q_j - \lambda_j N_j \quad (3)$$

Integrando, se obtiene la concentración (núcleos/ $\text{cm}^3$ ) del isótopo  $j$ , siendo  $t_i$  el tiempo de irradiación y  $t_c$  el tiempo de enfriamiento:

$$N_j(t) = \left( \frac{Q_j}{\lambda_j} \right) \cdot (1 - e^{-\lambda_j t_i}) e^{-\lambda_j t_c} \quad (4)$$

y multiplicando por  $\lambda_j$  se obtiene la actividad:

$$A_j(t) = Q_j (1 - e^{-\lambda_j t_i}) e^{-\lambda_j t_c} \quad (5)$$

La actividad obtenida gracias a la ecuación (5) es específica ( $\text{Bq/cm}^3$ ). Para obtener la actividad total es necesario multiplicar por el volumen de la celda.

Mientras que CINDER'90 proporciona directamente la actividad específica de la muestra en  $\frac{\text{Ci}}{\text{barn} \cdot \text{cm}}$  [7], MCNP calcula la tasa de interacción de cada isótopo ( $Q_j$ ) usando los *tallies* F4 y FM4 para las reacciones consideradas, incluidas en la Tabla 2.

**Tabla 2: Reacciones producidas en la muestra.**

$^{50}\text{Cr} (n, \gamma) ^{51}\text{Cr}$	$^{58}\text{Fe} (n, \gamma) ^{59}\text{Fe}$
$^{54}\text{Cr} (n, \gamma) ^{55}\text{Cr}$	$^{58}\text{Ni} (n, \gamma) ^{59}\text{Ni}$
$^{55}\text{Mn} (n, 2n) ^{54}\text{Mn}$	$^{58}\text{Ni} (n, \alpha) ^{55}\text{Fe}$
$^{55}\text{Mn} (n, \gamma) ^{56}\text{Mn}$	$^{60}\text{Ni} (n, p) ^{60}\text{Co}$
$^{54}\text{Fe} (n, p) ^{54}\text{Mn}$	$^{62}\text{Ni} (n, \gamma) ^{63}\text{Ni}$
$^{54}\text{Fe} (n, \gamma) ^{55}\text{Fe}$	$^{64}\text{Ni} (n, \gamma) ^{65}\text{Ni}$

Todos los registros generados con MCNP son normalizados por partícula emitida. Por lo tanto, la actividad calculada es por neutrón y segundo. La población neutrónica instantánea puede ser calculada como:

$$\dot{N} = \bar{P} \cdot C \cdot \nu \quad (6)$$

Donde:  $\dot{N}$  es la población neutrónica instantánea (n/s),  $\bar{P}$  el poder promedio (W), C es una constante igual a 3.12E+10 fisiones/W-s; y  $\nu$  es el número medio de neutrones emitidos por fisión, igual a 2.47.

## 2.2. Autoblindaje

Es importante cuantificar la perturbación del flujo neutrónico producido a través de la muestra mediante el factor de autoblindaje G. Dicho valor depende de las propiedades físicas y nucleares del material irradiado, así como de la geometría y dimensiones de la muestra. Se define como la razón entre  $\Phi$  o flujo neutrónico efectivo de la muestra y  $\Phi_s$  o flujo neutrónico en su superficie.

Aunque el software Monte Carlo tiene en cuenta este efecto, se ha calculado el valor teórico de autoblindaje para evaluar la posible desviación entre ambos métodos; exacto y estadístico. Para obtener el valor de autoblindaje teórico [8] se emplea la ecuación:

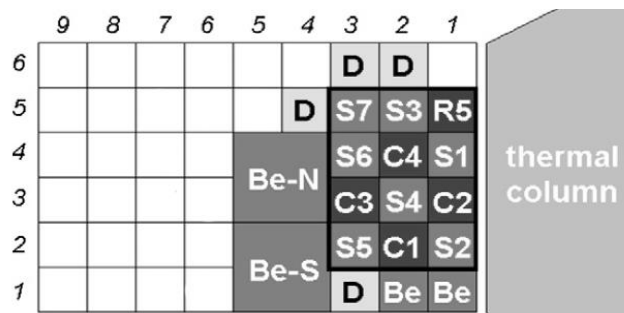
$$G = \frac{G_0}{1 - \frac{\Sigma_s}{\Sigma_t} \cdot (1 - G_0)} \quad (7)$$

Donde:  $G_0$  es un factor de autoblindaje antes de la corrección por dispersión,  $\Sigma_s$  la sección macroscópica de dispersión del acero y  $\Sigma_t$  la sección macroscópica total del acero. Los datos de sección eficaz [9] son referidos a neutrones térmicos a través de acero con una composición como la listada en la Tabla 1.

## 2.3. Irradiación de la muestra

Tanto la irradiación como las medidas fueron realizadas dentro de las instalaciones del Reactor Portugués de Investigación (RPI), un reactor de tipo piscina [10]. La configuración del núcleo, mostrada en la Figura 1, consiste en siete elementos combustibles estándar y cinco de control, con unas dimensiones de 8x8x60cm cada uno.

Alrededor del núcleo, existen elementos reflectantes tales como una columna térmica de grafito, bloques de berilio y agua. Contiene cuatro elementos huecos para mejorar el margen de seguridad termohidráulico. Los elementos combustibles, de control, huecos y reflectores de berilio, están montados sobre una rejilla de 9x6 posiciones.



**Figura 1: Configuración del núcleo del RPI. (SX: e. combustible estándar; CX: e. de control; R5: e. de regulación; D: e. hueco; Be: reflector de berilio).**

Las muestras son normalmente irradiadas en las posiciones libres de la rejilla, en los elementos huecos y en las cavidades de algunos reflectores de berilio. En este caso la irradiación se produce en el elemento hueco 54, con la misma estructura externa que un elemento combustible, pero sin las placas de combustible internas.

La muestra de acero cilíndrica ( $\varnothing = 9.97\text{mm}$ ,  $h = 48.03\text{mm}$ ) es irradiada durante 12h. Dicha muestra, suspendida por un cabo en el centro del elemento hueco, se coloca en la posición de máximo flujo teórico. Para homogeneizar la irradiación de la muestra, se rota durante el proceso para minimizar el efecto del autoblindaje.

## 2.4. Medidas experimentales

Después de la irradiación se ha medido la tasa de dosis en aire con un detector *probe 6150AD-t*, calibrado con una fuente de  $^{137}\text{Cs}$ . Para ello se coloca el detector sobre la superficie la piscina del reactor y se varía la profundidad a la que la muestra es sumergida para tres tiempos de enfriamiento diferentes: 12.12h, 18.45h y 37.03h.

Los resultados mostrados en la Tabla 3 son tasas de dosis netas, eliminando la radiación de fondo de  $8\mu\text{Sv/h}$ , con la muestra a diferentes profundidades.

**Tabla 3. Comparativa de tasas de dosis.**

Profundidad (in)	Tasa de dosis neta ( $\mu\text{Sv/h}$ )		
	Tiempo de enfriamiento	Tiempo de enfriamiento	Tiempo de enfriamiento
	12.12h	18.45h	37.03h
8		10800	
9		7940	
10		6570	
11		5150	915
12		4150	751
13		3290	508
14		2550	412
15	7550	2180	290
16	7170	1730	249
17	4900	1520	195
18	4040	1300	194
19	3310	917	187
20	2640	714	134
21	2120	592	98.9
22		470	65.8
23		420	53.2
24	1310	355	46.6

## 2.5. Cálculo de la tasa de dosis

Para calcular las tasas de dosis a diferentes profundidades se usa MCNP5 y dos registros diferentes para registrar las partículas; el flujo medio a través de una celda (F4) y el flujo en un detector esférico (F5) de volumen equivalente. El registro F4 se emplea junto con la tarjeta FMESH, que permite al usuario definir una red superpuesta a la geometría del problema. Por lo tanto, con F4MESH se obtiene la fluencia ( $\text{cm}^{-2}$ ) en los nodos de dicha malla. Usando la tarjeta DF con los factores de conversión apropiados,  $\mu_{\text{en}}/\rho$  [11,12] para cada energía de fotón considerada, y multiplicando por su energía, se puede calcular la tasa de dosis en MeV/g-s. A través de los factores de conversión adecuados, la tasa de dosis se obtiene en  $\mu\text{Sv/h}$ .

Con la intención de aumentar el rendimiento de la simulación, se ha utilizado la técnica de reducción de varianza de ventanas de peso para fotones y electrones. Las simulaciones se llevan a cabo en una secuencia iterativa con un número creciente de partículas para optimizar el proceso.

MCNP siempre normaliza los resultados por partícula. Por lo tanto, el valor obtenido debe ser multiplicado por el número de fotones/s emitidos por la muestra. Dicho número puede obtenerse multiplicando la actividad en Bq por la intensidad (fotones/desintegración) para cada fotopico. [9]

## 3. RESULTADOS Y DISCUSIÓN

### 3.1. Actividad

Los resultados de la simulación por MC y Cinder'90 muestran los valores de actividad al final de la irradiación por nucleido producido en la muestra. Gracias a la fórmula (5) es posible calcular la actividad en función del tiempo de enfriamiento ( $t_c$ ). La Tabla 4 muestra la actividad total en Bq por isótopo al final de la irradiación, así como para los diferentes tiempos de enfriamiento considerados.

**Tabla 4. Evolución de la actividad por nucleido obtenida por MCNP y CINDER'90**

Nucleido	A (Bq)							
	MCNP				CINDER'90			
	$t_c$ (0 h)	$t_c$ (12.12 h)	$t_c$ (18.45 h)	$t_c$ (37.03 h)	$t_c$ (0 h)	$t_c$ (12.12 h)	$t_c$ (18.45 h)	$t_c$ (37.03 h)
<sup>51</sup> Cr	8.70528E+9	8.59598E+9	8.53944E+9	8.37561E+9	8.687E+9	8.578E+9	8.521E+9	8.358E+9
<sup>55</sup> Cr	7.96896E+9	2.00592E-53	4.0572E-86	4.4017E-182	8.638E+9	2.174E-53	4.398E-86	4.771E-182
<sup>54</sup> Mn	4.54535E+6	4.54026E+6	4.53760E+6	4.52980E+6	4.987E+6	4.982E+6	4.979E+6	4.970E+6
<sup>56</sup> Mn	1.2052E+12	4.63806E+10	8.46150E+9	5.73641E+7	1.257E+12	4.839E+10	8.828E+9	5.984E+7
<sup>55</sup> Fe	1.59612E+8	1.59556E+8	1.59527E+8	1.59442E+8	1.600E+8	1.599E+8	1.599E+8	1.598E+8
<sup>59</sup> Fe	8.31370E+7	8.24855E+7	8.21473E+7	8.11626E+7	9.010E+7	8.939E+7	8.903E+7	8.796E+7
<sup>60</sup> Co	7.56956E+3	1.02572E+4	1.02572E+4	1.02572E+4	1.391E+4	1.391E+4	1.391E+4	1.391E+4
<sup>59</sup> Ni	1.02572E+4	7.56818E+3	7.56746E+3	7.56535E+3	1.365E+4	1.378E+4	1.378E+4	1.378E+4
<sup>63</sup> Ni	1.58031E+6	1.58030E+6	1.58029E+6	1.58026E+6	1.732E+6	1.732E+6	1.732E+6	1.732E+6
<sup>65</sup> Ni	4.16929E+9	1.48129E+8	2.59204E+7	1.55479E+5	4.717E+9	1.676E+8	2.933E+7	1.759E+5

Los valores muestran que el isótopo más importante en términos de actividad varía en función del tiempo de enfriamiento de la muestra. Dividiendo el estudio de acuerdo con los tiempos de enfriamiento, se observa que:

- En la primera etapa, correspondiente a 12.12h después del cese de la irradiación, la gran mayoría de la actividad viene del  $^{56}\text{Mn}$ , con más del 98% del total de la muestra.
- En la segunda etapa, después de 18.45h de enfriamiento, el protagonismo se divide entre el  $^{56}\text{Mn}$  y  $^{51}\text{Cr}$ , con aproximadamente un 49% de la actividad total cada uno.
- En último lugar, a las 37.03h, el principal nucleido es  $^{51}\text{Cr}$  con casi una aportación del 96.5% sobre la actividad global.

Esto se debe a la elevada sección eficaz de la reacción  $(n, \gamma)$  del manganeso y la corta vida media de su isótopo  $^{56}\text{Mn}$  (2.582h). Durante la irradiación de 12h dicho isótopo alcanza el equilibrio y posteriormente se desintegra a lo largo del tiempo de enfriamiento. Por otra parte,  $\text{Cr}^{51}$  con una vida media de 27.7 días, se desintegra más lentamente y su actividad permanece casi constante durante el tiempo de enfriamiento considerado.

Los valores de ambos métodos manifiestan una clara correlación. Comparando únicamente los dos principales radioisótopos,  $^{56}\text{Mn}$  y  $^{51}\text{Cr}$ , se observa una concordancia de más del 99% entre MC y CINDER'90. Al sumar todas las actividades por nucleido para obtener una medida de la actividad total (ver Tabla 8), se observa que la máxima desviación entre métodos es menor del 5% en el inicio y disminuye de forma inversamente proporcional al tiempo de enfriamiento.

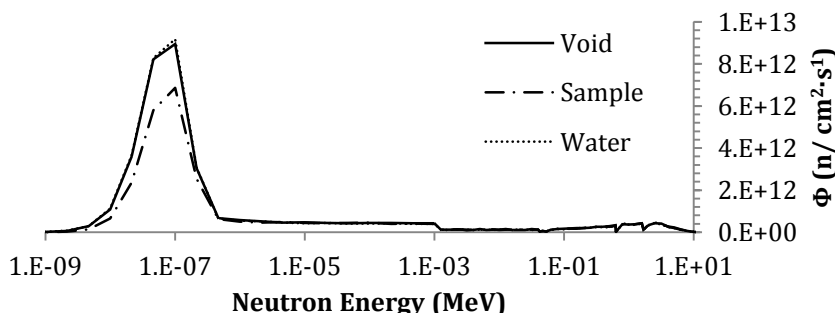
Por lo tanto queda probada la equivalencia de ambos métodos para calcular la actividad total de la muestra a través del tiempo.

**Tabla 8: Comparativa entre métodos.**

Tiempo de enfriamiento	A total (Bq) MC	A total (Bq) CINDER'90	RATIO CINDER'90/MC
0h	$1.22635 \cdot 10^{12}$	$1.27972 \cdot 10^{12}$	1.043
12.12h	$5.53728 \cdot 10^{10}$	$5.73888 \cdot 10^{10}$	1.036
18.45h	$1.72747 \cdot 10^{10}$	$1.76339 \cdot 10^{10}$	1.021
37.03h	$8.67987 \cdot 10^9$	$8.67243 \cdot 10^9$	0.999

### 3.2. Autoblindaje

En la Figura 2 se muestra el espectro neutrónico calculado para tres medios diferentes en el lugar de irradiación de la muestra. Refleja la distorsión del flujo neutrónico producido por la muestra.



**Figura 2: Espectro neutrónico en la posición de la muestra para diferentes medios.**

Calculando el factor de autoblandaje estadístico en base a los valores de MC, el resultado es de 83.34%. Mientras que, el valor teórico de G obtenido gracias a la ecuación (7) es 85.50 %. Por tanto, el autoblandaje obtenido en la simulación concuerda con el calculado teóricamente.

### 3.3. Tasa de dosis

Todas las medidas se llevan a cabo con el detector sumergido bajo al menos 8 pulgadas de agua. En estas condiciones, solo los rayos gamma logran alcanzar el detector. Por ello, los nucleidos  $^{59}\text{Ni}$  y  $^{63}\text{Ni}$  producidos en la activación neutrónica pueden ser despreciados en el cálculo de la tasa de dosis al no ser emisores gamma.

Para los restantes isótopos, el número de fotones emitidos por segundo se calcula como la actividad en Bq por la probabilidad de cada tipo de desintegración gamma y su energía relacionada.

Los resultados de la simulación se han agrupado en la Tabla 9, así como el cociente entre ambos registros para comparar su convergencia.

**Tabla 9: Tasa de dosis calculada ordenada por registro y sus ratios.**

Prof. (in)	$t_c$ (37.03 h)			$t_c$ (18.48 h)			$t_c$ (12.12 h)		
	Tasa de dosis ( $\mu\text{Sv/h}$ )			Tasa de dosis ( $\mu\text{Sv/h}$ )			Tasa de dosis ( $\mu\text{Sv/h}$ )		
	Tally F4	Tally F5	Cociente F4/F5	Tally F4	Tally F5	Cociente F4/F5	Tally F4	Tally F5	Cociente F4/F5
24	6.06	6.39	0.9484	369.414	376.148	0.9821	1968.644	2043.166	0.9635
23	7.68	8.016	0.9581	457.833	458.160	0.9993			
22	9.31	10.07	0.9245	531.495	556.255	0.9555			
21	11.75	12.72	0.9237	647.094	679.555	0.9522	3468.749	3694.688	0.9388
20	15.21	16.16	0.9412	790.222	832.043	0.9497	4238.399	4511.702	0.9394
19	19.61	20.58	0.9529	993.489	1024.641	0.9696	5486.402	5558.125	0.9871
18	25.59	26.30	0.9730	1204.004	1264.748	0.9520	6519.549	6867.418	0.9493
17	31.44	33.83	0.9294	1546.524	1572.090	0.9837	8382.516	8493.438	0.9869
16	42.53	43.85	0.9699	1886.578	1959.702	0.9627	10388.067	10610.043	0.9791
15	54.08	56.93	0.9499	2323.158	2450.232	0.9481	12521.364	13237.288	0.9459
14	71.15	74.47	0.9554	2912.931	3091.035	0.9424			
13	90.87	98.01	0.9272	3666.012	3925.544	0.9339			
12	121.76	129.82	0.9379	4692.213	5025.020	0.9338			
11	161.04	173.45	0.9285	6038.137	6492.079	0.9301			
10				7867.998	8476.441	0.9282			
9				10384.308	11222.742	0.9253			
8				13686.209	15130.068	0.9046			

Se observa que la concordancia entre métodos es buena, con discrepancias máximas de menos del 10% y disminuyendo a medida que se aleja la muestra del detector. Dicho efecto puede ser explicado debido al factor de forma del detector; ya que el registro F4 calcula el flujo neutrónico para una geometría igual a la del detector real, mientras que el registro F5 lo hace para una esfera de volumen equivalente.



## 4. CONCLUSIONES

Se ha empleado CINDER'90 y un modelo de MC para simular la activación neutrónica en un reactor y calcular la actividad de una muestra de acero irradiada. Las discrepancias máximas entre métodos son menores del 4.6% al finalizar la irradiación y disminuyen a medida que el tiempo de enfriamiento aumenta. Estos resultados permiten confirmar la equivalencia de ambos métodos.

Al analizar el autoblindaje de la muestra se verifica que la simulación se aproxima en un 97.5% al valor teórico exacto.

En base a estos resultados, se han creado modelos de MC, en código MCNP5, para evaluar la tasa de dosis para diferentes tiempos de enfriamiento y distancias de la muestra irradiada. Los resultados obtenidos mediante dos registros diferentes han sido comparados con medidas experimentales. Ambos registros muestran un alto grado de correlación, existiendo en el caso más desfavorable una desviación menor del 10%.

## AGRADECIMIENTOS

Mi más sincero agradecimiento al Departamento de Ingeniería Química y Nuclear (UPV) y al personal de la *Unidade de Reactores e Segurança Nuclear* (ITN). Dicho trabajo ha sido posible gracias al soporte recibido por el programa Erasmus Prácticas.

## REFERENCIAS

- 1) Monte Carlo team, "MCNP – A General Monte Carlo N-particle Transport Code, Version 5" LA-UR-03-1987, Los Alamos National Laboratory, Abril, 2003.
- 2) J. Ródenas, S. Gallardo, A. Abarca, V. Juan, "Estimation of the activity generated by neutron activation in control rods of a BWR", *Applied Radiation and Isotopes* 2010; 68 (4-5) 905–908.
- 3) J. Ródenas, S. Gallardo, A. Abarca, V. Juan, "Analysis of the dose rate produced by control rods discharged from a BWR into the irradiated fuel pool", *Applied Radiation and Isotopes* 2010; 68 (4-5) 909–912.
- 4) J. Ródenas, S. Gallardo, A. Abarca, E. Sollet, "Validation of the Monte Carlo model developed to assess the activity generated in control rods of a BWR", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A* 619 (2010) 258–261.
- 5) J. Ródenas, A. Abarca, S. Gallardo, "Analysis of dose rates received around the storage pool for irradiated control rods in a BWR Nuclear Power Plant", *Applied Radiation and Isotopes* 2011 Agosto; 69 (8): 1104-1107.
- 6) N. Catarino, "Determinação da composição de uma amostra por PIXE", ITN report. Enero 2010.
- 7) W. B. Wilson, S. T. Cowell, T. R. England, A. C. Hayes, P. Moller, "A manual for CINDER'90 Version 07.4 Codes and Data", LA-UR-07.8412, Los Alamos National Laboratory, diciembre, 2007.
- 8) D. Inglis, "Classified Los Alamos Report LA-26" referenced in: "Introduction to the theory of neutron diffusion. Volume 1", Los Alamos Scientific Laboratory, junio, 1953.
- 9) Java-based Nuclear Information Software (JANIS),  
<http://www.oecd-nea.org/tools/abstract/detail/nea-1760/> Library employed: JEF(F) 3.1.2 (2012)
- 10) A.C. Fernandes, J.P. Santos, J.G. Marques, A. Kling, A.R. Ramos, N.P. Barradas, "Validation of the Monte Carlo model supporting core conversion of the Portuguese Research Reactor (RPI) for neutron fluence rate determinations", *Annals of Nuclear Energy* 1139 –1145 (2010)
- 11) S. M. Seltzer, "Calculation of Photon Mass Energy-Transfer and Mass Energy-Absorption Coefficients", *Rad. Res.* 1993, 136, 147-170.
- 12) National Institute of Standards and Technology, "Tables of X-Ray Mass Attenuation Coefficients and Mass Energy Absorption Coefficients", <http://www.nist.gov>